第15卷 第4期 光学学报 Vol. 15, No. 4
1995年4月 ACTA OPTICA SINICA April, 1995

晶体中三阶有效非线性系数的计算方法

杨学林 谢绳武
(上海交通大学应用物理系，上海 200030)

摘 要 经过对 $\chi^{(3)}_{ijkl}$ 的脚标进行简化压缩处理，首次得出了全部晶体点群共11种不同的 $\chi^{(3)}_{im}$ 矩阵表达形式及 Kleinman 对称条件成立下的简化形式，给出了各类晶体中四波相互作用过程中 $\chi^{(3)}_{eff}$ 的计算方法。

关键词 晶体， 四波相互作用， 三阶有效非线性系数。

1 引　言

晶体中四波相互作用过程，如四波混频(FWM)、直接三次谐波产生(THG)，通常有三束激光入射而产生第四束光。第四束光的产生效率取决于该过程的有效非线性系数 $\chi^{(3)}_{eff}$ 及其相位匹配情况。有效非线性系数 $\chi^{(3)}_{eff}=e_i\chi^{(3)}_{ijkl}e_je_ke_l$，一般地说，$\chi^{(3)}_{ijkl}$ 有81个元素。1965年，Midwinter[1] 通过简单模仿弹光系数 p_{ijkl} 的对称性，得出了几种点群压缩脚标后的 $\chi^{(3)}_{im}$ 形式；Butcher[2] 在考察了各种晶体点群的对称性后，也曾给出了 $\chi^{(3)}_{ijkl}$ 的独立非零元素个数及其形式，并且被广泛地参照。1987年，Shang 和 Hsu[3] 对 Butcher 的工作进行了验证并作出了修正，其结果收录于文献[4]中。

本文参照文献[1]提出的 $\chi^{(3)}_{im}$ 的压缩脚标形式，对文献[4]中的 $\chi^{(3)}_{ijkl}$ 各独立非零元素进行重新组合，首次给出了32种晶体点群所对应11种不同的 $\chi^{(3)}_{im}$ 的矩阵形式。也同时给出 Kleinman 条件下的 $\chi^{(3)}_{im}$ 矩阵形式。另外，对于单轴晶体和双轴晶体中不同的相位匹配情况，研究了 $\chi^{(3)}_{eff}$ 的计算方法。

2 $\chi^{(3)}_{im}$ 的形式

众所周知，$\chi^{(3)}_{ijkl}$ 存在本征置换对称性，即 $\chi^{(3)}_{ijkl}(-\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 中的 (j, ω_1)，(k, ω_2)，(l, ω_3) 和 $(i, -\omega_4)$ 相应位置同时置换时，$\chi^{(3)}_{ijkl}$ 的值应保持不变。在一般的实验条件下，如晶体中的三次谐波实验，$\chi^{(3)}_{ijkl}$ 对入射光频率 ω_1，ω_2 和 ω_3 的色散可以忽略，那么，在对 jkl 的相对位置进行置换时，$\chi^{(3)}_{ijkl}$ 仍保持不变。在这个近似条件下，可以对 $\chi^{(3)}_{ijkl}$ 的脚标进行类似于 $\chi^{(2)}_{ijk}$ 的脚标压缩，以 $\chi^{(3)}_{im}$ 代替，相应的 m 对应脚标如下：

jkl	xxx	yyy	zzz	yzz	yyz	xzz	xxz	xyy	xxy	xyz
m	1	2	3	4	5	6	7	8	9	0

* 本工作由国家教委博士点基金和上海市科委自然科学基金资助.

收稿日期：1994年3月12日

这样，$\chi^{(3)}_{ijkl}$ 的 81 个元素就减少到 $\chi^{(3)}_{im}$ 的 30 个元素。$\chi^{(3)}_{im}$ 可以用 3×10 的矩阵表示为：

$$\chi^{(3)}_{im}=\begin{bmatrix}\chi_{11} & \chi_{12} & \chi_{13} & \chi_{14} & \chi_{15} & \chi_{16} & \chi_{17} & \chi_{18} & \chi_{19} & \chi_{10}\\ \chi_{21} & \chi_{22} & \chi_{23} & \chi_{24} & \chi_{25} & \chi_{26} & \chi_{27} & \chi_{28} & \chi_{29} & \chi_{20}\\ \chi_{31} & \chi_{32} & \chi_{33} & \chi_{34} & \chi_{35} & \chi_{36} & \chi_{37} & \chi_{38} & \chi_{39} & \chi_{30}\end{bmatrix} \tag{1}$$

考虑到各晶体点群的不同对称性对 $\chi^{(3)}_{im}$ 的影响，一般，$\chi^{(3)}_{im}$ 的独立元素个数小于 30 个。参照文献[4]给出的 $\chi^{(3)}_{ijkl}$ 独立非零元素情况，得到了 32 种晶体点群所对应 11 种不同的 $\chi^{(3)}_{im}$ 的矩阵形式。Kleinman 条件下的 $\chi^{(3)}_{im}$ 矩阵形式也同时给出，参见表 1。

Table 1. The matrix forms of the third-order nonlinear susceptibility $\chi^{(3)}_{im}$ for different crystal classes. (There are two forms for a certain crystal class, the above one is the form in general, the one below is under Kleinman symmetry. For cubic classes 432, $\bar{4}$3m and m3m, Kleinman symmetry has no effect.)

crystal class	$\chi^{(3)}_{im}$
triclinic $\{1, \bar{1}\}$	$\begin{bmatrix}\chi_{11} & \chi_{12} & \chi_{13} & \chi_{14} & \chi_{15} & \chi_{16} & \chi_{17} & \chi_{18} & \chi_{19} & \chi_{10}\\ \chi_{21} & \chi_{22} & \chi_{23} & \chi_{24} & \chi_{25} & \chi_{26} & \chi_{27} & \chi_{28} & \chi_{29} & \chi_{20}\\ \chi_{31} & \chi_{32} & \chi_{33} & \chi_{34} & \chi_{35} & \chi_{36} & \chi_{37} & \chi_{38} & \chi_{39} & \chi_{30}\end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix}\chi_{11} & \chi_{12} & \chi_{13} & \chi_{14} & \chi_{15} & \chi_{16} & \chi_{17} & \chi_{18} & \chi_{19} & \chi_{10}\\ \chi_{19} & \chi_{22} & \chi_{23} & \chi_{24} & \chi_{25} & \chi_{14} & \chi_{10} & \chi_{12} & \chi_{18} & \chi_{15}\\ \chi_{17} & \chi_{25} & \chi_{33} & \chi_{23} & \chi_{24} & \chi_{13} & \chi_{16} & \chi_{15} & \chi_{10} & \chi_{14}\end{bmatrix}$
monoclinic $\{2, m, 2/m\}$	$\begin{bmatrix}\chi_{11} & 0 & \chi_{13} & 0 & \chi_{15} & \chi_{16} & \chi_{17} & \chi_{18} & 0 & 0\\ 0 & \chi_{22} & 0 & \chi_{24} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{29} & \chi_{20}\\ \chi_{31} & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{35} & \chi_{36} & \chi_{37} & \chi_{38} & 0 & 0\end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix}\chi_{11} & 0 & \chi_{13} & 0 & \chi_{15} & \chi_{16} & \chi_{17} & \chi_{18} & 0 & 0\\ 0 & \chi_{22} & 0 & \chi_{24} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{18} & \chi_{15}\\ \chi_{17} & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{24} & \chi_{13} & \chi_{16} & \chi_{15} & 0 & 0\end{bmatrix}$
orthorhombic $\{222, mm2, mmm\}$	$\begin{bmatrix}\chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{18} & 0 & 0\\ 0 & \chi_{22} & 0 & \chi_{24} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{29} & 0\\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{35} & 0 & \chi_{37} & 0 & 0 & 0\end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix}\chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{18} & 0 & 0\\ 0 & \chi_{22} & 0 & \chi_{24} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{18} & 0\\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{24} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0\end{bmatrix}$
tetragonal $\{4, \bar{4}, 4/m\}$	$\begin{bmatrix}\chi_{11} & \chi_{12} & 0 & \chi_{14} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{18} & \chi_{19} & 0\\ -\chi_{12} & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & -\chi_{14} & 0 & -\chi_{19} & \chi_{18} & 0\\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{35} & 0 & \chi_{35} & 0 & 0 & 0\end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix}\chi_{11} & \chi_{12} & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{18} & -\chi_{12} & 0\\ -\chi_{12} & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 & \chi_{12} & \chi_{18} & 0\\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0\end{bmatrix}$
tetragonal $\{422, 4mm, 4/mmm, \bar{4}2m\}$	$\begin{bmatrix}\chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{18} & 0 & 0\\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{18} & 0\\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{35} & 0 & \chi_{35} & 0 & 0 & 0\end{bmatrix}$

	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{18} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{18} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
hexagonal {6, $\overline{6}$, 6/*m*}	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} & 0 & \chi_{14} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{11}/3 & \chi_{12}/3 & 0 \\ -\chi_{12} & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & -\chi_{14} & 0 & -\chi_{12}/3 & \chi_{11}/3 & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{35} & 0 & \chi_{35} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{11}/3 & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{11}/3 & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
hexagonal {622, 6*mm*, 6/*mmm*, $\overline{6}$*m*2}	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{11}/3 & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{11}/3 & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{35} & 0 & \chi_{35} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{11}/3 & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{11}/3 & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
trigonal {3, $\overline{3}$}	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} & 0 & \chi_{14} & \chi_{15} & \chi_{16} & -\chi_{15} & \chi_{11}/3 & \chi_{12}/3 & \chi_{10} \\ -\chi_{12} & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & -\chi_{10} & -\chi_{14} & \chi_{10} & -\chi_{12}/3 & \chi_{11}/3 & \chi_{15} \\ \chi_{31} & \chi_{32} & \chi_{33} & 0 & \chi_{35} & 0 & \chi_{35} & -\chi_{31} & -\chi_{32} & 0 \end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & \chi_{15} & \chi_{16} & -\chi_{15} & \chi_{11}/3 & 0 & \chi_{10} \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & -\chi_{10} & 0 & \chi_{10} & 0 & \chi_{11}/3 & \chi_{15} \\ -\chi_{15} & -\chi_{10} & \chi_{33} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & \chi_{15} & \chi_{10} & 0 \end{bmatrix}$
trigonal {3*m*, $\overline{3}$*m*, 32}	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & \chi_{15} & \chi_{16} & -\chi_{15} & \chi_{11}/3 & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & -\chi_{15} & 0 & 0 & 0 & \chi_{11}/3 & \chi_{15} \\ \chi_{31} & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{35} & 0 & \chi_{35} & -\chi_{31} & 0 & 0 \end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & \chi_{15} & \chi_{16} & -\chi_{15} & \chi_{11}/3 & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & -\chi_{15} & 0 & 0 & 0 & \chi_{11}/3 & \chi_{15} \\ -\chi_{15} & 0 & \chi_{33} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & \chi_{15} & 0 & 0 \end{bmatrix}$
cubic {23, *m*3}	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{18} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{18} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{18} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
cubic {432, $\overline{4}$3*m*, *m*3*m*}	$\begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{16} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{11} & 0 & \chi_{16} & 0 & \chi_{16} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$

3　$\chi_{\mathrm{eff}}^{(3)}$ 的计算方法

假设入射光波电场强度的单位矢量分别为 $\boldsymbol{e}(\omega_1)$、$\boldsymbol{e}(\omega_2)$ 和 $\boldsymbol{e}(\omega_3)$，产生的第四束光波电场强度的单位矢量为 $\boldsymbol{e}(\omega_4)$，那么，$\chi_{eff}^{(3)}$ 可以表示成：

$$\chi_{\rm eff}^{(3)} = [e_4][\chi_{ijkl}^{(3)}][e_{jkl}] = [e_4][\chi_{im}^{(3)}][e_m]. \tag{2}$$

这里，

$$[e_4] = [e_{4x},\ e_{4y},\ e_{4z}]$$

$$[e_m] = \begin{bmatrix} L_{xxx} \\ L_{yyy} \\ L_{zzz} \\ L_{yzz} + L_{zyz} + L_{zzy} \\ L_{yyz} + L_{yzy} + L_{zyy} \\ L_{xzz} + L_{zxz} + L_{zzx} \\ L_{xxz} + L_{xzx} + L_{zxx} \\ L_{xyy} + L_{yxy} + L_{yyx} \\ L_{xxy} + L_{xyx} + L_{yxx} \\ L_{xyz} + L_{xzy} + L_{yxz} + L_{yzx} + L_{zxy} + L_{zyx} \end{bmatrix} \tag{3}$$

式中，$L_{ijk} = e_i(\omega_1)e_j(\omega_2)e_k(\omega_3)$，$i$，$j$，$k$ 各自对应于折射率主轴坐标系中的电场强度单位矢量的 x，y，z 分量。对于不同的相位匹配情形，L_{ijk} 不一样，因此，$[e_m]$ 矩阵形式也不同。以下以单轴晶体和双轴晶体为例，给出其电场强度单位矢量的分量形式。

3.1 单轴晶体

晶体内 o 光和 e 光的电场强度的单位矢量分别为：

$$e^{(0)} = \begin{bmatrix} \sin\phi \\ -\cos\phi \\ 0 \end{bmatrix}, \tag{4}$$

$$e^{(e)} = \begin{bmatrix} \cos(\theta+\alpha)\cos\phi \\ \cos(\theta+\alpha)\sin\phi \\ -\sin(\theta+\alpha) \end{bmatrix}, \tag{5}$$

式中，θ 为 $\boldsymbol{K}$ 矢量与光轴(Z 轴)之间的夹角，ϕ 为 $\boldsymbol{K}$ 矢量在 XY 平面内的投影与 X 轴之间的夹角，α 为光离散角。

3.2 双轴晶体

晶体的折射率曲面具有双层性质，折射率较大的与较小的可分别对应于 e_1 和 e_2 层面。忽略光离散角，它们各自的电场强度的单位矢量分别为

$$e^{(e1)} = \begin{bmatrix} \cos\theta\cos\phi\cos\delta - \sin\phi\sin\delta \\ \cos\theta\sin\phi\cos\delta + \cos\phi\sin\delta \\ -\sin\theta\cos\delta \end{bmatrix}, \tag{6}$$

$$e^{(e2)} = \begin{bmatrix} -\cos\theta\cos\phi\sin\delta - \sin\phi\cos\delta \\ -\cos\theta\sin\phi\sin\delta + \cos\phi\cos\delta \\ \sin\theta\sin\delta \end{bmatrix}, \tag{7}$$

式中，θ 为光在晶体主轴坐标系中 $\boldsymbol{K}$ 矢量与 Z 轴之间的夹角，ϕ 为 $\boldsymbol{K}$ 矢量在 XY 平面内的投影与 X 轴之间的夹角，δ 表示在$(\theta,\ \phi)$ 方向上所相应电场偏振态位置。根据 Biot-Fresnel 定理，有

$$\cot 2\delta = \frac{\cot^2 \Omega \sin^2 \theta - \cos^2 \theta \cos^2 \phi + \sin^2 \phi}{\cos \theta \sin 2\phi}, \tag{8}$$

其中，Ω 为光轴与 Z 轴的夹角，

$$\tan \Omega = \frac{n_z}{n_x} \left[\frac{n_y^2 - n_x^2}{n_z^2 - n_y^2}\right]^{1/2}. \tag{9}$$

综合式(2)、(4)和 (5)式，或(2)、(6)和 (7)式，对于单轴晶体和双轴晶体，可以容易地推导出各种相位匹配情形下的 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ 表达式。

4 计算实例

为简单起见，仅考虑晶体中直接三次谐波产生的情形，推导出在单轴晶体点群 $3m$（如 BBO 晶体)中具体的 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ 表达式形式。

对于负单轴晶体中的三次谐波产生，有三种相位匹配形式，它们分别为

$$ooo \rightarrow e, \qquad ooe \rightarrow e, \qquad oee \rightarrow e,$$

分别称之为 I、II 及 III 型相位匹配。例如，I 型三次谐波产生表示入射 ω_1 光波的三个 o 光光子产生一个 $3\omega_1$ 的 e 光光子的过程。由(2)、(4)、(5) 式和表 1 中点群 $3m$ 的 Kleinman 条件下的 $\chi_{im}^{(3)}$ 形式，可推导出对任意相位匹配角(θ, ϕ) 时的 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ 值。对 I 型相位匹配，有

$$[e_{m,I}] = \begin{bmatrix} \sin^3 \phi \\ \cos^3 \phi \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 3 \sin \phi \cos^2 \phi \\ 3 \sin^2 \phi \cos \phi \\ 0 \end{bmatrix} \tag{10}$$

$$[e_4] = [\cos(\theta + \alpha_4) \cos \phi,\ \cos(\theta + \alpha_4) \sin \phi,\ -\sin(\theta + \alpha_4)], \tag{11}$$

$$\chi_{\text{eff},I}^{(3)} = -[\chi_{15} \sin(3\phi) + \chi_{10} \cos(3\phi)] \sin(\theta + \alpha_4), \tag{12}$$

同理可得，

$$\chi_{\text{eff},II}^{(3)} = \frac{1}{3} \chi_{11} \cos(\theta + \alpha_4) \cos(\theta + \alpha_1) + [\chi_{10} \sin(3\phi) - \chi_{15} \cos(3\phi)] \cdot \sin(2\theta + \alpha_1 + \alpha_4) + \chi_{16} \sin(\theta + \alpha_4) \sin(\theta + \alpha_1), \tag{13}$$

$$\chi_{\text{eff},III}^{(3)} = \frac{3}{2} [\chi_{10} \cos(3\phi) + \chi_{15} \sin(3\phi) \cos(\theta + \alpha_4) \sin(2\theta + 2\alpha_1)]. \tag{14}$$

(12)～(14)式中，α_1，α_4 分别对应基波与三次谐波的光离散角。

5 讨论与结论

如表 1 所示，首次得到了全部晶体点群共 11 种不同的 $\chi_{im}^{(3)}$ 矩阵形式，Kleinman 对称条件下的 $\chi_{im}^{(3)}$ 矩阵形式也同时给出。这样，三阶有效非线性系数 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ 的计算，就可直接写成矩阵运

算的形式，同时便于运用计算机编程进行。表1更正了文献[1]中通过简单模仿弹光系数的对称性而得出有误的三角晶系 $\chi^{(3)}_{lm}$ 矩阵形式。通过对表1中 $\bar{3}m$ 点群与文献[6]中 $\chi^{(3)}_{lm}$ 的矩阵形式的比较可知，文献[6]由于直接参照了文献[2]的错误结果，得出了错误 $\chi^{(3)}_{lm}$ 的矩阵形式。本文推导出的单轴晶体点群 $3m$ 中具体的 $\chi^{(3)}_{eff}$ 表达式形式与文献[5]一致。关于双轴晶体具体的 $\chi^{(3)}_{eff}$ 表达式形式，由于结果比较繁杂，没有给出，但是原则上是可以全部写出的。本文给出的不同晶体中，对于各种不同的相位匹配情况下的 $\chi^{(3)}_{eff}$ 的计算方法，对于进行晶体中的各类四波互作用实验研究，特别是三次谐波产生实验研究，具有理论指导意义。

参 考 文 献

[1] J. E. Midwinter, J. Warner, The effects of phase matching method and of crystal symmetry on the polar dependence of third-order nonlinear optical polarization. *Brit. J. Appl. Phys.*, 1965, **16**(12): 1665~1674

[2] P. N. Bucher, *Nonlinear Optical Phenomena*, Bullitin 200, Engineer Experiment Station, Ohio State University (Columbus, Ohio 1965)

[3] C. C. Shang, H. Hsu, The spatial symmetric forms of the third-order nonlinear susceptibility. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1987, **QE-23**(2): 177~179

[4] P. N. Bucher, D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics*, Cambridge, Cambridge, University Press, 1990

[5] P. Qiu, A. Penzkofer, Picosecond third-harmonic light generation in β-BaB_2O_4, *Appl. Phys. B*, 1988, **45**(4): 225~236

[6] A. Penzkofer, P. Qiu, Picosecond third-harmonic light generation in calcite, *Appl. Phys. B*, 1988, **47**(1): 71~81

Calculation Methods of the Third-Order Effective Nonlinear Susceptibility in Crystals

Yang Xuelin Xie Shengwu

(*Department of Applied Physics, Shanghai Jiaotong University, Shanghai* 200030)

(Received 12 March 1994)

Abstract Eleven different matrix forms of the third-order nonlinear susceptibility for all crystal classes are obtained by contracting subcript method for the first time. Meanwhile, the simplified forms under Kleinman symmetry condition are also presented. Calculation methods of the third-order effective nonlinear susceptibility in crystals when four-wave interactions occur are studied theoretically.

Key words crystal, four wave interaction, the third-order effective nonlinear susceptibility.